

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-282270

(43)Date of publication of application : 03.10.2003

(51)Int.Cl. H05B 33/22  
C09K 11/06  
H05B 33/14

(21)Application number : 2002-082918

(71)Applicant : KONICA CORP

(22)Date of filing : 25.03.2002

(72)Inventor : KITA HIROSHI  
YAMADA TAKETOSHI  
MATSUURA MITSUYOSHI  
INOUE YOSHIO  
OI SHUICHI  
TAKAYAMA MASAKAZU

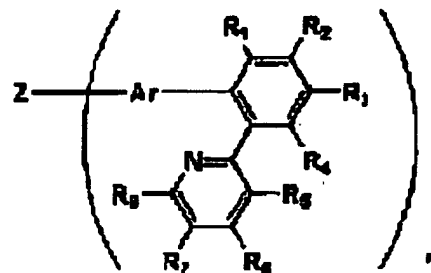
## (54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE AND DISPLAY USING THE SAME

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic electroluminescent device attaining the improvement of luminance and durability at the same time, and to provide a display using the same and having high luminance and a long life.

SOLUTION: This organic electroluminescent device is characterized in including, at least, one type of compounds expressed by a general formula (1). (In the formula, Z expresses n valence bond group or a simple bond, Ar expresses bivalent arylene group, R1-R8 express hydrogen atom or substituted group respectively. The n expresses integer not less than 2 and not more than 6. Among R1-R8, adjoining substituted groups may be mutually condensed and formed into a ring.

一般式(1)



(19)日本国特許庁 (J P)

## (12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2003-282270

(P2003-282270A)

(43)公開日 平成15年10月3日(2003.10.3)

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	データベース(参考)
H 0 5 B 33/22		H 0 5 B 33/22	B 3 K 0 0 7
C 0 9 K 11/06	6 4 0	C 0 9 K 11/06	6 4 0
	6 4 5		6 4 5
	6 5 0		6 5 0
	6 5 5		6 5 5

審査請求 未請求 請求項の数14 O L (全 26 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2002-82918(P2002-82918)

(22)出願日 平成14年3月25日(2002.3.25)

(71)出願人 000001270

コニカ株式会社

東京都新宿区西新宿1丁目26番2号

(72)発明者 北 弘志

東京都日野市さくら町1番地コニカ株式会社  
社内

(72)発明者 山田 岳俊

東京都日野市さくら町1番地コニカ株式会  
社内

(72)発明者 松浦 光宜

東京都日野市さくら町1番地コニカ株式会  
社内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを用いた表示装置

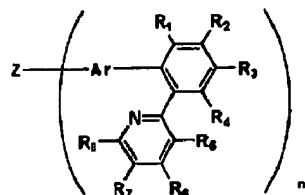
## (57)【要約】

【課題】 本発明の目的は、発光輝度の向上および耐久性を両立した有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを用いた発光輝度の高い、長寿命な表示装置を提供することにある。

【解決手段】 下記一般式(1)で示される化合物を少なくとも1種含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化1】

一般式(1)



〔式中、Zはn個の連結基または単なる結合手を表し、Arは2個のアリーレン基を表し、R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>は各々水素原子または置換基を表す。nは2以上6以下の整数を表

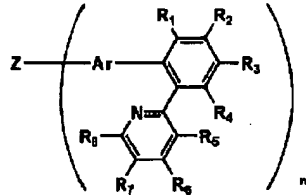
す。R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>のうち、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。〕

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式（1）で示される化合物を少なくとも1種含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化1】

## 一般式(1)

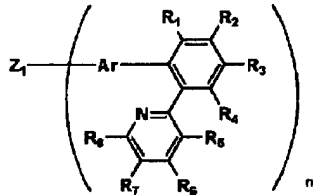


〔式中、Zはn個の連結基または単なる結合手を表し、Arは2価のアリーレン基を表し、R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>は各々水素原子または置換基を表す。nは2以上6以下の整数を表す。R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>のうち、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。〕

【請求項2】 前記一般式（1）で表される化合物が、下記一般式（2）で表される化合物であることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化2】

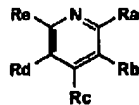
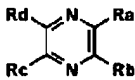
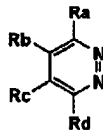
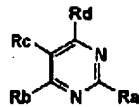
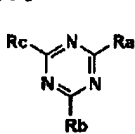
## 一般式(2)



〔式中、Z<sub>1</sub>は

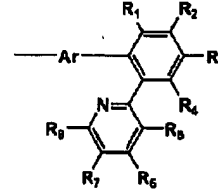
## 【化3】

Z<sub>1</sub>:



を表し、nは2以上6以下の置換基を表す。R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>のうち少なくとも2つは、

## 【化4】

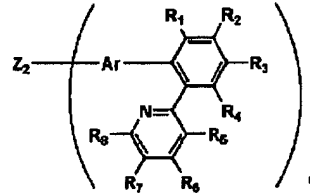


10 で表される置換基であり、複数の該置換基は同一であっても違っていてもよい。R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>のうち、該置換基でないものは、各々水素原子または任意の置換基を表し、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。また、Arは2価のアリーレン基を表し、R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>は各々水素原子または置換基を表す。R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>のうち、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。〕

【請求項3】 前記一般式（1）で表される化合物が、下記一般式（3）で表される化合物であることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

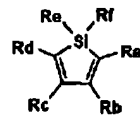
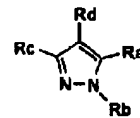
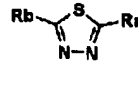
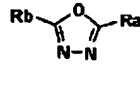
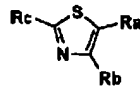
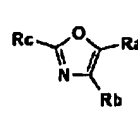
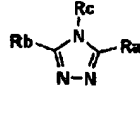
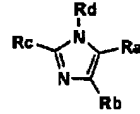
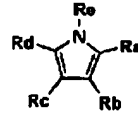
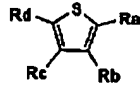
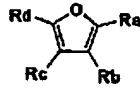
## 【化5】

## 一般式(3)



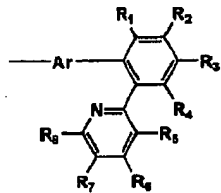
〔式中、Z<sub>2</sub>は

## 【化6】

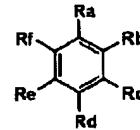
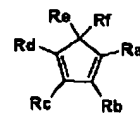
3  
Z<sub>2</sub>:

を表し、nは2以上6以下の置換基を表す。R<sub>1</sub>～R<sub>7</sub>のうち少なくとも2つは

【化7】

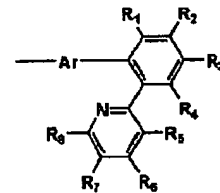


20

Z<sub>3</sub>:

を表し、nは2以上6以下の置換基を表す。R<sub>1</sub>～R<sub>7</sub>のうち少なくとも2つは

【化10】



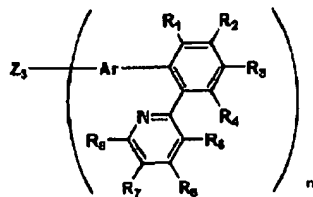
30

で表される置換基であり、複数の該置換基は同一であっても違っていてもよい。R<sub>1</sub>～R<sub>7</sub>のうち、該置換基でないものは、各々水素原子または任意の置換基を表し、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。また、Arは2価のアリーレン基を表し、R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>は各々水素原子または置換基を表す。R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>のうち、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。]

【請求項4】 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(4)で表される化合物であることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化8】

一般式(4)

〔式中、Z<sub>3</sub>は

【化9】

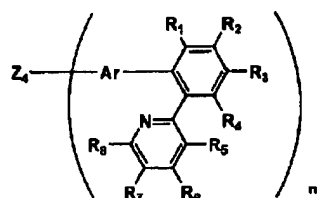
で表される置換基であり、複数の該置換基は同一であっても違っていてもよい。R<sub>1</sub>～R<sub>7</sub>のうち、該置換基でないものは、各々水素原子または任意の置換基を表し、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。また、Arは2価のアリーレン基を表し、R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>は各々水素原子または置換基を表す。R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>のうち、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。]

40 【請求項5】 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(5)で表される化合物であることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

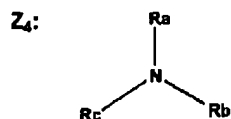
【化11】

5

一般式(5)

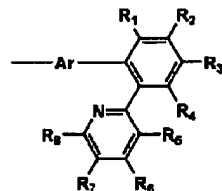
〔式中、Z<sub>4</sub>は

【化12】



を表し、nは2または3を表す。R<sub>a</sub>～R<sub>c</sub>のうち少なくとも2つは

【化13】

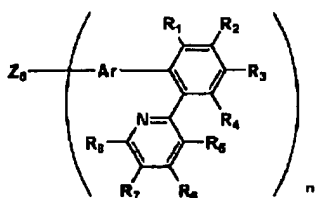


で表される置換基であり、複数の該置換基は同一であっても違っていてもよい。R<sub>a</sub>～R<sub>c</sub>のうち、該置換基でないものは、各々水素原子または任意の置換基を表す。また、A<sub>r</sub>は2価のアリーレン基を表し、R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>は各々水素原子または置換基を表す。R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>のうち、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。〕

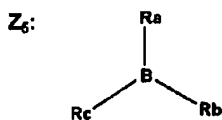
【請求項6】 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(6)で表される化合物であることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化14】

一般式(6)

〔式中、Z<sub>5</sub>は

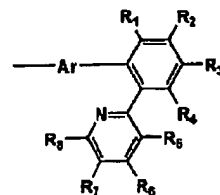
【化15】



を表し、nは2または3を表す。R<sub>a</sub>～R<sub>c</sub>のうち少なくとも2つは

6

【化16】

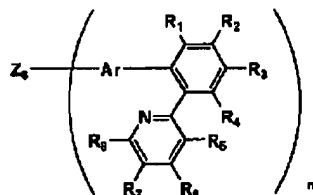


で表される置換基であり、複数の該置換基は同一であっても違っていてもよい。R<sub>a</sub>～R<sub>c</sub>のうち、該置換基でないものは、各々水素原子または任意の置換基を表す。また、A<sub>r</sub>は2価のアリーレン基を表し、R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>は各々水素原子または置換基を表す。R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>のうち、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。〕

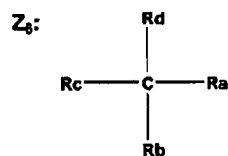
【請求項7】 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(7)で表される化合物であることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化17】

一般式(7)

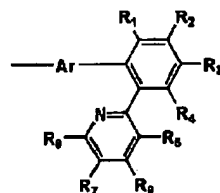
〔式中、Z<sub>6</sub>は

【化18】



を表し、nは2または3を表す。R<sub>a</sub>～R<sub>d</sub>のうち少なくとも2つは

【化19】



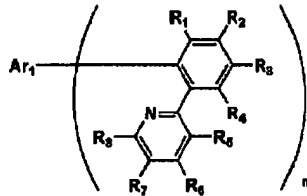
で表される置換基であり、複数の該置換基は同一であっても違っていてもよい。R<sub>a</sub>～R<sub>d</sub>のうち、該置換基でないものは、各々水素原子または任意の置換基を表し、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。また、A<sub>r</sub>は2価のアリーレン基を表し、R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>は各々水素原子または置換基を表す。R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>のうち、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよ

い。]

【請求項8】 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(8)で表される化合物であることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化20】

一般式(8)



〔式中、 $Ar_1$ は $m$ 価のアリーレン基を表し、 $R_1 \sim R_8$ は各々水素原子または置換基を表す。 $n$ は2以上6以下の整数を表す。 $R_1 \sim R_8$ のうち、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。〕

【請求項9】 電子輸送層が、前記一般式(1)～(8)で表される化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項10】 発光層が、前記一般式(1)～(8)で表される化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項11】 ホスト化合物及びリン光性化合物を含有する発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、該ホスト化合物が前記一般式(1)～(8)で表される化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項12】 前記リン光性化合物が、イリジウム化合物、オスmium化合物または白金化合物であることを特徴とする請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項13】 前記リン光性化合物が、イリジウム化合物であることを特徴とする請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項14】 請求項1～13のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を有することを特徴とする表示装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、有機エレクトロルミネッセンス（以下有機ELとも略記する）素子及びそれを用いた表示装置に関するものであり、詳しくは、発光輝度に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを用いた表示装置である。

【0002】

【従来の技術】 発光型の電子ディスプレイデバイスとして、エレクトロルミネッセンスディスプレイ(ELD)がある。ELDの構成要素としては、無機エレクトロルミネッセンス素子や有機エレクトロルミネッセンス素子が挙げられる。無機エレクトロルミネッセンス素子は、平面型光源として使用されてきたが、発光素子を駆動させるためには交流の高電圧が必要である。有機エレクトロルミネッセンス素子は、発光する化合物を含有する発光層を陰極と陽極で挟んだ構成を有し、発光層に電子及び正孔を注入して、再結合させることにより励起子(エキシトン)を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出(蛍光・燐光)を利用して発光する素子であり、数V～数十V程度の電圧で発光が可能であり、さらに、自己発光型であるために視野角に富み、視認性が高く、薄膜型の完全固体素子であるために省スペース、携帯性等の観点から注目されている。

【0003】 しかしながら、今後の実用化に向けた有機EL素子には、さらなる低消費電力で効率よく高輝度に発光する有機EL素子の開発が望まれている。

【0004】 これまで、様々な有機EL素子が報告されている。例えば、Appl. Phys. Lett., Vol. 51, 913頁、あるいは特開昭59-194393号に記載の正孔注入層と有機発光体層とを組み合わせたもの、特開昭63-295695号に記載の正孔注入層と電子注入輸送層とを組み合わせたもの、Jpn. Journal of Applied Physics, vol. 127, No. 2第269～271頁に記載の正孔移動層と発光層と電子移動層とを組み合わせたものがそれぞれ開示されている。しかしながら、より高輝度な素子が求められており、エネルギー変換効率、発光量子効率の更なる向上が期待されている。

【0005】 また、発光寿命が短いという問題点も指摘されている。こうした経時での輝度劣化の要因は、完全には解明されていないが、発光中のエレクトロルミネッセンス素子は自ら発する光、及びその時に発生する熱などによって薄膜を構成する有機化合物自体の分解や薄膜中での有機化合物の結晶化等、有機EL素子材料である有機化合物に由来する要因も指摘されている。

【0006】 また、電子輸送材料は、現在のところ、知見が少なく、反結合軌道を利用することも相俟って、実用に耐える有用な高性能電子輸送材料は見いだされていないのが現状である。例えば、九州大学の研究グループは、オキサジアゾール系誘導体である2-(4-ピフェニル)-5-(4-*t*-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(*t*-BuPBD)をはじめ、薄膜安定性を向上させたオキサジアゾール二量体系誘導体の1,3-ビス(4-*t*-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジゾリル)ピフェニレン(OXD-1)、1,3-ビス(4-*t*-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジゾリル)フェニレン(OXD-7)(Jpn. J. A

10

20

30

40

50

pp1. Phys. vol. 31 (1992), p. 1812) を提案している。また、山形大学の研究グループは、電子ブロック性に優れたトリアゾール系電子輸送材料を用いることにより、白色発光の素子を作製している (Science, 3 March 1995, Vol. 267, p. 1332)。さらに、特開平5-331459号公報には、フェナントロリン誘導体が電子輸送材料として有用であることが記載されている。

【0007】しかし、従来の電子輸送材料では、薄膜形成能が低く、容易に結晶化が起こるため、発光素子が破壊されてしまう問題があり、実用に耐える素子性能を発現できなかった。

【0008】これらの問題を解決する有機エレクトロルミネッセンス材料として、特開平9-87616、特開平9-194487、特開2000-186094において、分子内にケイ素原子を含む化合物を発光材料または電子輸送材料として用いる例が記載されているが、発光効率及び発光寿命の両立については十分ではなかった。

【0009】一方、発光層を宿主化合物及び微量の蛍光体で構成することにより、発光効率の向上を達成するという手法が報告されている。例えば、特許第3093796号では、スチルベン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体又はトリススチリルアリーレン誘導体に、微量の蛍光体をドーブし、発光輝度の向上、素子の長寿命化を達成している。また、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体を宿主化合物として、これに微量の蛍光体をドーブした有機発光層を有する素子 (特開昭63-264692号公報)、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体を宿主化合物として、これにキナクリドン系色素をドーブした有機発光層を有する素子 (特開平3-255190号公報) が知られている。以上のように、蛍光量子収率の高い蛍光体をドーブすることによって、従来の素子に比べて発光輝度を向上させている。

【0010】しかし、上記のドーブされる微量の蛍光体からの発光は、励起一重項からの発光であり、励起一重項からの発光を用いる場合、一重項励起子と三重項励起子の生成比が1:3であるため、発光性励起種の生成確率が25%であることと、光の取り出し効率が約20%であるため、外部取り出し量子効率 ( $\eta_{\text{ext}}$ ) の限界は5%とされている。ところが、プリンストン大から励起三重項からの燐光発光を用いる有機EL素子が報告

(M. A. Baldo et al., nature, 395巻、151~154ページ (1998年)) がされて以来、室温で燐光を示す材料の研究が活発になってきている (例えば、M. A. Baldo et al., nature, 403巻、17号、750~753ページ (2000年)、US特許6097147号など)。励起三重項を使用すると、内部量子効率の上限が100%となるため、励起一重項の場合に比べて原理的

に発光効率が最大4倍となり、冷陰極管とほぼ同等の性能が得られ照明用にも応用可能であり注目されている。

【0011】燐光性化合物をドープメントとして用いるときのホストは、燐光性化合物の発光極大波長よりも短波な領域に発光極大波長を有することが必要であることはもちろんであるが、その他にも満たすべき条件があることが分かってきた。

【0012】The 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence (EL '00、浜松) では、燐光性化合物についていくつかの報告がなされている。例えば、Ikaiらはホール輸送性の化合物を燐光性化合物のホストとして用いている。また、M. E. Thompsonらは、各種電子輸送性材料を燐光性化合物のホストとして、これらに新規なイリジウム錯体をドーブして用いている。さらに、Tsutsuiらは、ホールブロック層の導入により高い発光効率を得ている。なお、ホールブロック層とは、通常有機EL素子で使われている電子輸送層と構成的には同じものであるが、その機能が電子輸送機能よりも発光層から陰極側に漏れ出すホールの移動を阻止する機能が有力であるためにホールブロック層と名付けられているものであり、一種の電子輸送層と解釈することもできる。

【0013】従って、本願においては、ホールブロック層も電子輸送層と称することとし、その層で用いられる材料 (ホールブロッカー) も電子輸送材料と称す。

【0014】燐光性化合物のホスト化合物については、例えば、C. Adachi et al., Appl. Phys. Lett., 77巻、904ページ (2000年) 等に詳しく記載されているが、高輝度の有機エレクトロルミネッセンス素子を得るためにホスト化合物に必要とされる性質について、より新しい観点からのアプローチが必要である。

【0015】しかし、いずれの報告も、素子の発光輝度の向上及び耐久性を両立しうる構成は得られていないのが現状である。

【0016】

【発明が解決しようとする課題】従って、本発明は、特定構造のフェニルピリジン化合物を用いて素子の発光輝度の向上および耐久性の両立を目的になされたものであり、また、本発明は、フェニルピリジン化合物をリン光発光用のホスト化合物として用いること、または、フェニルピリジン化合物を電子輸送材料 (ホールブロッカー) として用いることにより、発光輝度の向上および耐久性の両立を達成した有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを用いた発光輝度の高い、長寿命な表示装置を提供するものである。

【0017】

【課題を解決するための手段】本発明の上記目的は、以

下の構成により達成された。

【0018】1. 前記一般式(1)で示される化合物を少なくとも1種含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0019】2. 前記一般式(1)で表される化合物が、前記一般式(2)で表される化合物であることを特徴とする前記1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0020】3. 前記一般式(1)で表される化合物が、前記一般式(3)で表される化合物であることを特徴とする前記1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0021】4. 前記一般式(1)で表される化合物が、前記一般式(4)で表される化合物であることを特徴とする前記1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0022】5. 前記一般式(1)で表される化合物が、前記一般式(5)で表される化合物であることを特徴とする前記1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0023】6. 前記一般式(1)で表される化合物が、前記一般式(6)で表される化合物であることを特徴とする前記1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0024】7. 前記一般式(1)で表される化合物が、前記一般式(7)で表される化合物であることを特徴とする前記1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0025】8. 前記一般式(1)で表される化合物が、前記一般式(8)で表される化合物であることを特徴とする前記1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0026】9. 電子輸送層が、前記一般式(1)～(8)で表される化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0027】10. 発光層が、前記一般式(1)～(8)で表される化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0028】11. ホスト化合物及びリン光性化合物を含有する発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、該ホスト化合物が前記一般式(1)～(8)で表される化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0029】12. 前記リン光性化合物が、イリジウム化合物、オスmium化合物または白金化合物であることを特徴とする前記1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0030】13. 前記リン光性化合物が、イリジウム化合物であることを特徴とする前記1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0031】14. 前記1～13項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を有することを特徴とする表示装置。

【0032】以下に本発明を詳細に説明する。はじめに、一般式(1)で表される化合物について説明する。

【0033】前記一般式(1)において、Zで表されるn価の連結基としては、特に制限はないが、好ましくは一般式(2)～一般式(7)のZ<sub>1</sub>～Z<sub>6</sub>で表される連結基である。

【0034】前記一般式(1)において、R<sub>1</sub>～R<sub>6</sub>は各々水素原子または置換基を表すが、置換基としては、例えば、アルキル基(例えば、メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、ベンジル基等)、アルケニル基(例えば、ビニル基、プロペニル基、スチリル基等)、アルキニル基(例えば、エチニル基等)、アリール基(例えば、フェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基等)、アルキルオキシ基(例えば、メトキシ基、エトキシ基、i-プロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基(例えば、フェノキシ基等)、アルキルチオ基(例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、i-プロピルチオ基等)、アリールチオ基(例えば、フェニルチオ基等)、ハロゲン原子(例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等)、アミノ基(例えば、ジメチルアミノ基、メチルアミノ基、ジフェニルアミノ基等)、シアノ基、ニトロ基、複素環基(例えば、ピロール基、ピロリジル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基等)等が挙げられる。芳香族基としては、上記アリール基およびヘテロアリール基(例えば、ピロール基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル等)が挙げられる。隣接する置換基同士は互いに縮合し環を形成しても良い。

【0035】前記一般式(2)～(7)において、R<sub>1</sub>～R<sub>6</sub>は各々水素原子または置換基を表すが、その具体例は前記R<sub>1</sub>～R<sub>6</sub>と同義である。

【0036】前記一般式(1)～(7)において、A<sub>r</sub>で表される2価のアリーレン基は、任意の芳香族化合物の任意の位置から、水素原子または置換基を2個取り除いた残基のことであり、該アリーレン基は炭化水素で構成されていても、ヘテロ原子を含む複素環であっても、縮合していてもよい。

【0037】前記一般式(8)において、A<sub>r1</sub>で表されるm価のアリーレン基は、任意の芳香族化合物の任意



の位置から、水素原子または置換基をm個取り除いた残基のことであり、該アリーレン基は炭化水素で構成されていても、ヘテロ原子を含む複素環であっても、縮合していてもよい。

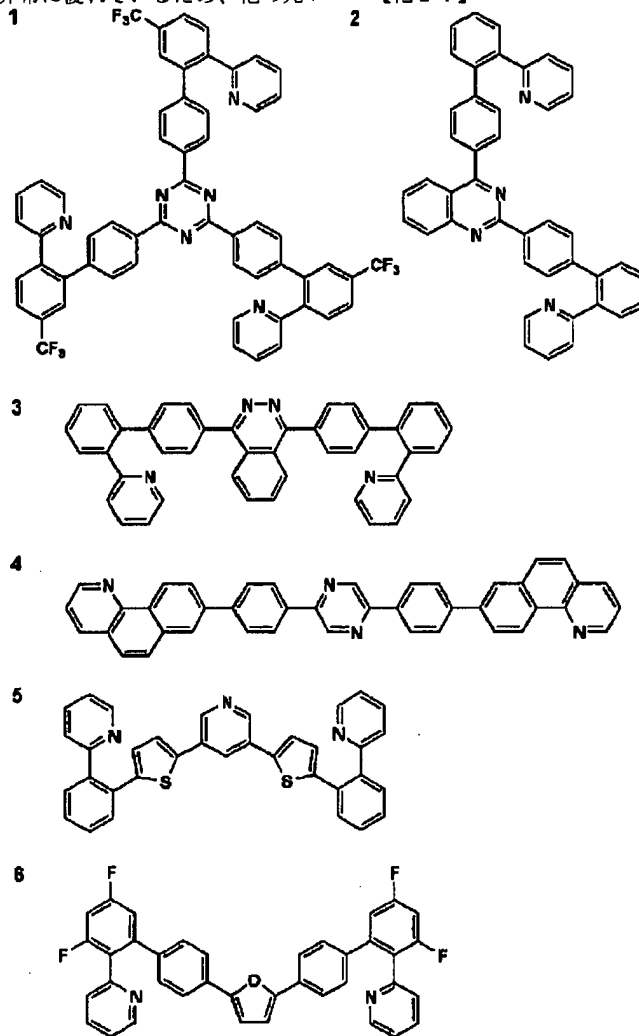
【0038】一般式(1)～(8)で表される本発明に係る各化合物は、固体状態において強い蛍光を持つ化合物であり、電場発光性にも優れており、発光材料として有効に使用できる。また、金属電極からの優れた電子注入性および電子輸送性が非常に優れているため、他の発\*

\* 光材料又は本発明に係る上記化合物を発光材料として用いた素子において、本発明に係る化合物を電子輸送材料、またはホールブロッカーとして使用した場合、優れた発光効率を示す。

【0039】以下、一般式(1)～(8)で表される化合物の具体的な例を以下に列挙するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

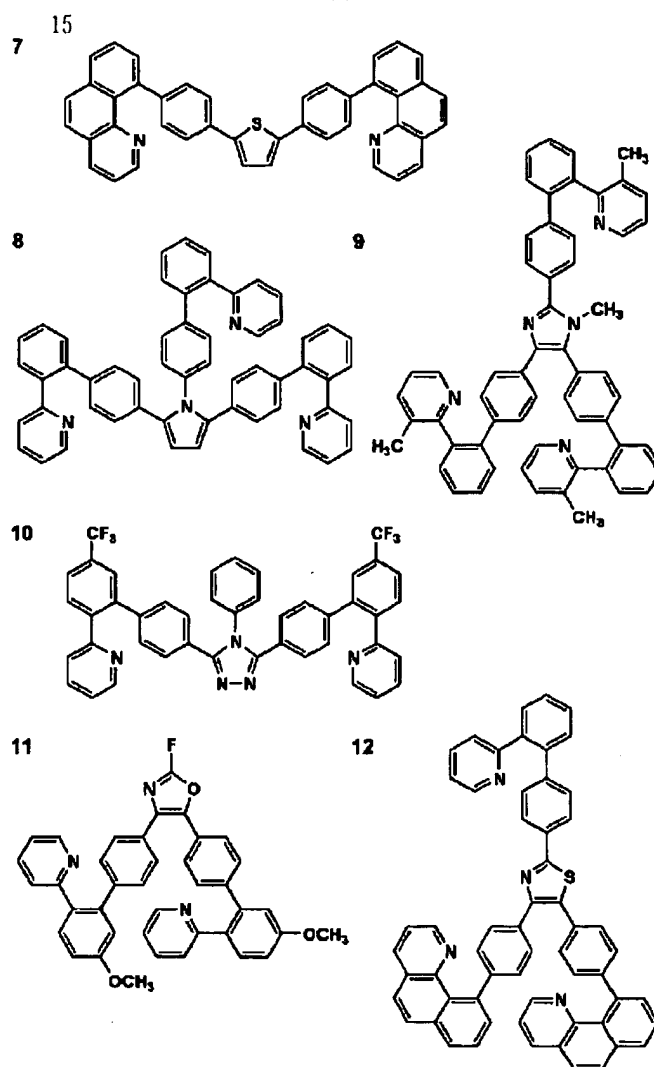
【0040】

【化21】



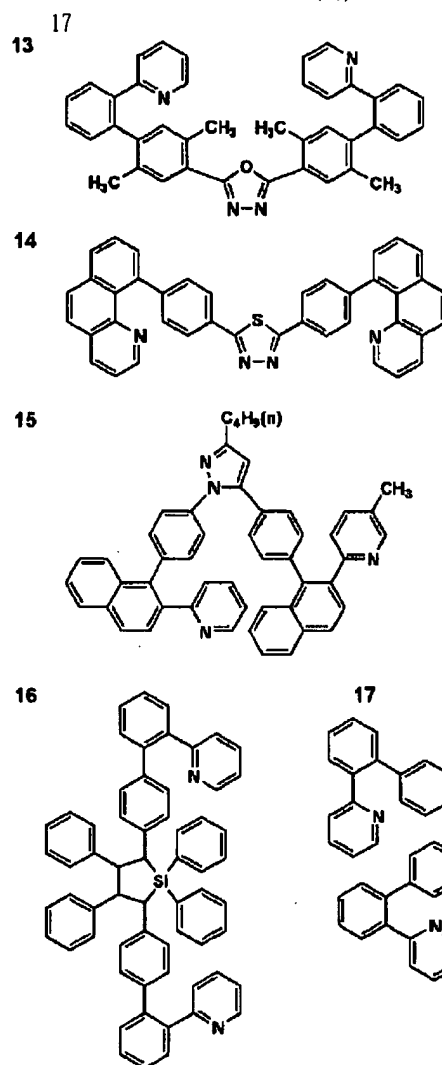
【0041】

【化22】



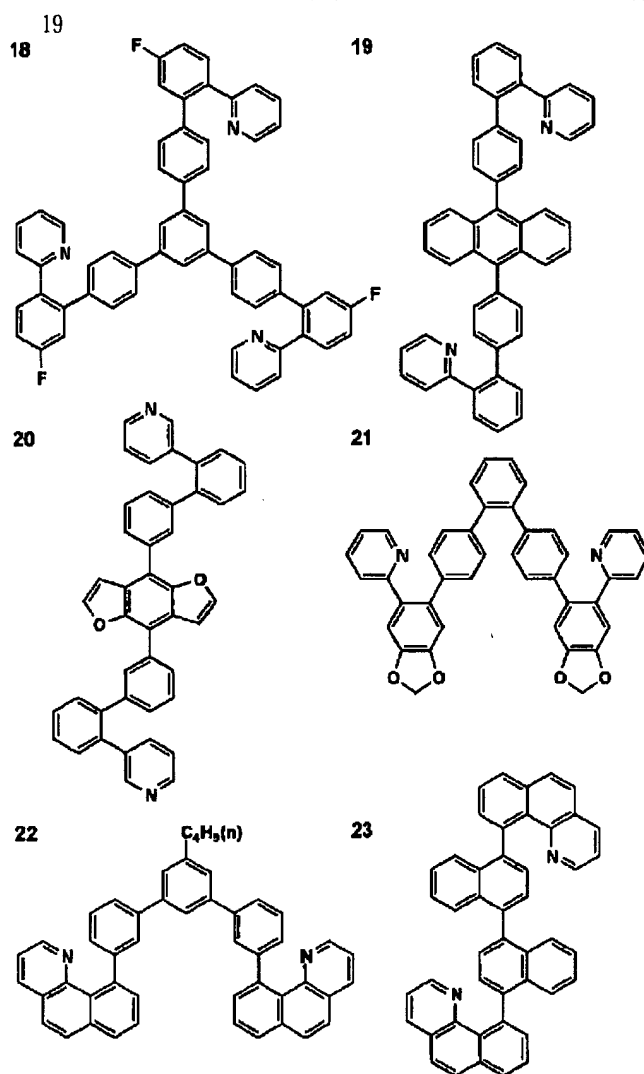
【0042】

【化23】



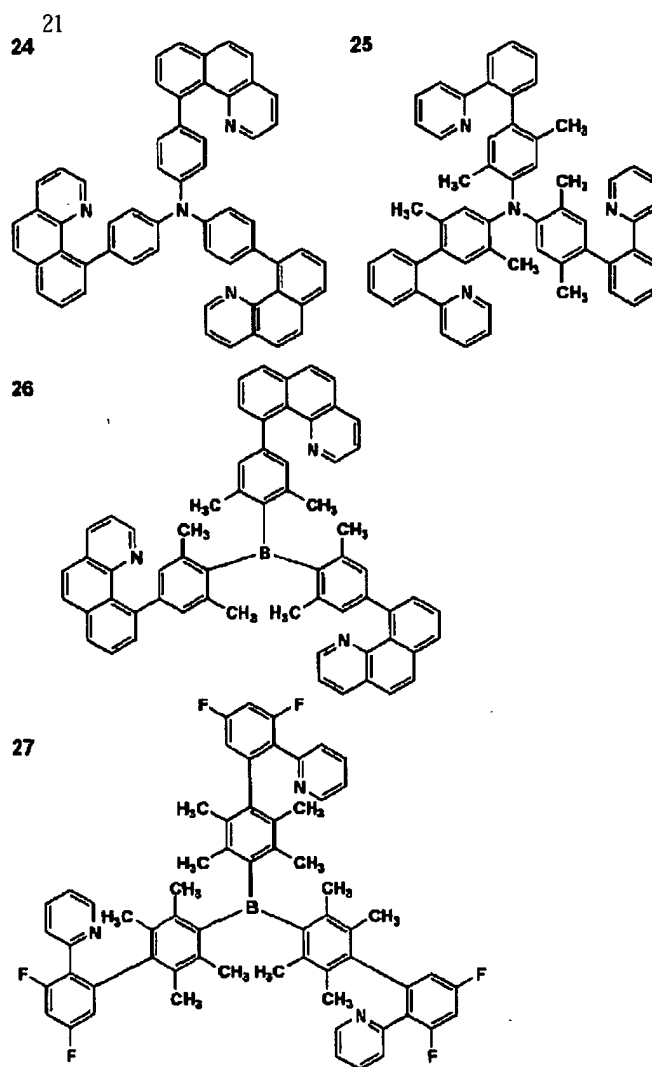
【0043】

【化24】



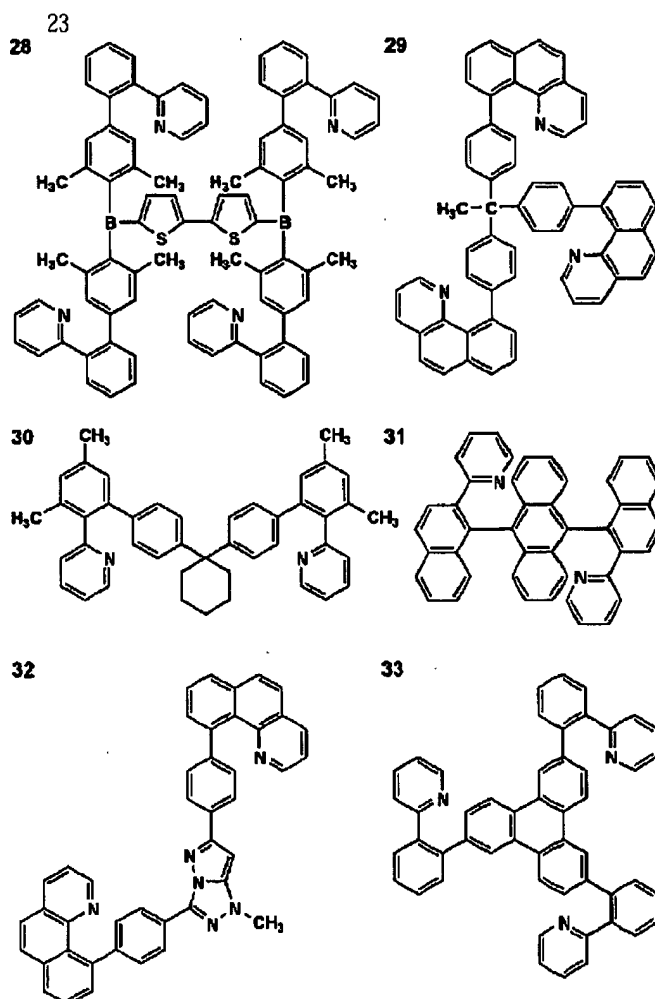
【0044】

【化25】



【0045】

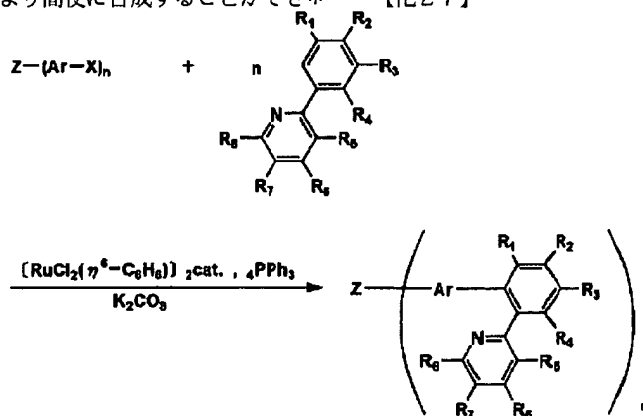
【化26】



【0046】本発明に係る上記化合物は、既知の合成方 30\* である。  
法に従って容易にごうせいすることができるが、以下に  
示す合成ルートにより、より簡便に合成することができ\*

【0047】

【化27】



【0048】上記反応は、オーガニックレター誌、Vol. 3, No. 16, p 2579~2581 (2001年) に詳細に説明されている。

【0049】また、本発明者等は、リン光性化合物のホスト化合物について鋭意検討を重ねた結果、本発明に係

るフェニルピリジン化合物をホスト化合物として用いて、有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した場合に、素子の発光輝度および寿命が改善されることを見出した。

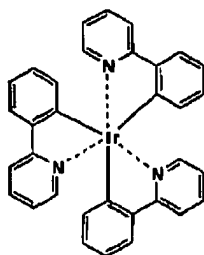
【0050】本発明でいうホスト化合物とは、2種以上

の化合物で構成される発光層中において、混合比（質量比）の最も高い化合物であり、それ以外の化合物はドープアント化合物という。例えば、発光層を化合物A、化合物Bという2種で構成し、その混合比がA:B=10:90であれば、化合物Aがドープアント化合物であり、化合物Bがホスト化合物である。更に、発光層を化合物A、化合物B、化合物Cの3種から構成し、その混合比がA:B:C=5:10:85であれば、化合物A、化合物Bがドープアント化合物であり、化合物Cがホスト化合物である。

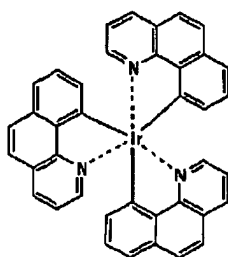
【0051】以上のような定義より、本発明に係るリン光性化合物は、ドープアント化合物の一種である。

【0052】本発明に係るリン光性化合物とは励起三重項からの発光が観測される化合物であり、リン光量子収率が、25℃において0.001以上の化合物である。好ましくは0.01以上である。更に好ましくは0.1以上である。

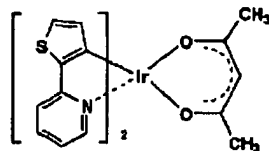
Ir-1



Ir-3



Ir-5



【0057】

\*【0053】上記リン光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光IIの398ページ（1992年版、丸善）に記載の方法により測定できる。溶液中でのリン光量子収率は種々の溶媒を用いて測定できるが、本発明で用いられるリン光性化合物とは、任意の溶媒のいずれかにおいて上記リン光量子収率が達成されれば良い。

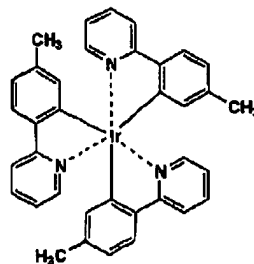
【0054】好ましくは、元素の周期律表でVIII属の金属を含有する錯体系化合物であり、さらに好ましくは、イリジウム、オウミウム、または白金錯体系化合物であり、より好ましくはイリジウム錯体系化合物である。

【0055】以下に、本発明で用いられるリン光性化合物の具体例を示すが、これらに限定されるものではない。これらの化合物は、例えば、Inorg. Chem. 40巻、1704-1711に記載の方法等により合成できる。

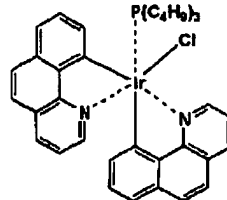
【0056】

\*【化28】

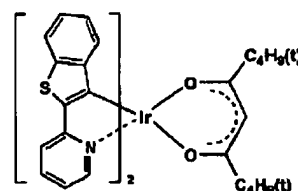
Ir-2



Ir-4

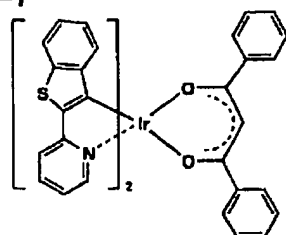


Ir-6

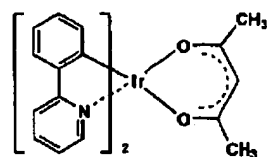


【化29】

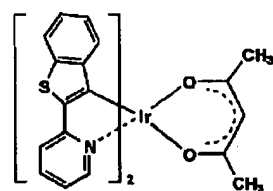
Ir-7



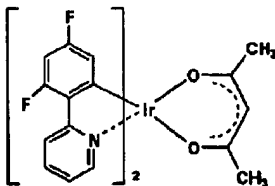
Ir-8



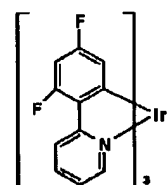
Ir-9



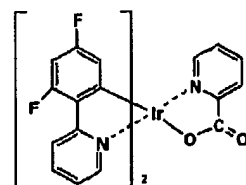
Ir-10



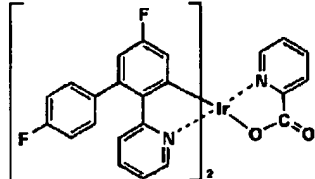
Ir-11



Ir-12



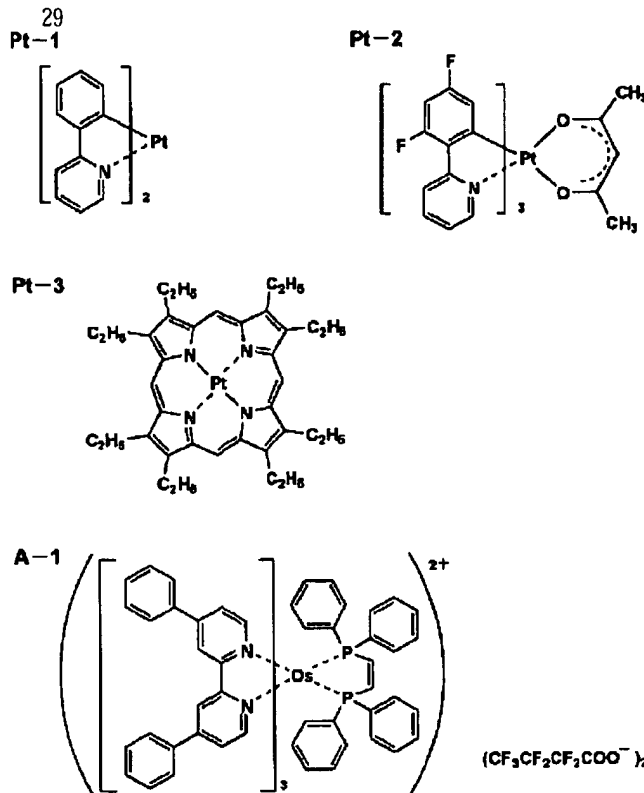
Ir-13



【0058】

【化30】





【0059】また、別の態様では、ホスト化合物とリン光性化合物の他に、リン光性化合物からの発光の極大波長よりも長波な領域に、蛍光極大波長を有する蛍光性化合物を少なくとも1種含有する場合もある。この場合、ホスト化合物とリン光性化合物からのエネルギー移動で、有機EL素子としての電界発光は蛍光性化合物からの発光が得られる。蛍光性化合物として好ましいのは、溶液状態で蛍光量子収率が高いものである。ここで、蛍光量子収率は0.1以上、特に0.3以上が好ましい。具体的には、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフェン系色素、または、希土類錯体系蛍光体などが挙げられる。ここでいう蛍光量子収率も、前記第4版実験化学講座7の分光IIの362ページ(1992年版、丸善)に記載の方法により測定することができる。

【0060】以下、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の構成要素について説明する。

【0061】本発明において、有機EL素子の層構成の好ましい具体例を以下に示すが、本発明これに限定されるものではない。

【0062】

- (i) 陽極／発光層／電子輸送層／陰極
- (ii) 陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極
- (iii) 陽極／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子

輸送層／陰極

(iv) 陽極／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極バッファ層／陰極

(v) 陽極／陽極バッファ層／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極バッファ層／陰極

有機EL素子における陽極としては、仕事関数の大きい(4 eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としてはAu等の金属、CuI、インジウムチンオキシド(ITO)、SnO<sub>2</sub>、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。また、ITO(In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ZnO)等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させ、フォトリソグラフィ法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は(100 μm以上程度)、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また、陽極としてのシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常10~1000 nm、好ましくは10~200 nmの範囲で選ばれる。

【0063】一方、陰極としては、仕事関数の小さい(4 eV以下)金属(電子注入性金属と称する)、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質と

するものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム ( $Al_2O_3$ ) 混合物、インジウム、リチウム/アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えば、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム ( $Al_2O_3$ ) 混合物、リチウム/アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましく、膜厚は通常10~1000nm、好ましくは50~200nmの範囲で選ばれる。なお、発光を透過させるため、有機EL素子の陽極または陰極のいずれか一方が、透明または半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。

【0064】次に、注入層、正孔輸送層、電子輸送層、発光層等について説明する。注入層は必要に応じて設け、電子注入層と正孔注入層があり、上記のごとく陽極と発光層または正孔輸送層の間、及び、陰極と発光層または電子輸送層との間に存在させてもよい。

【0065】注入層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線(1998年11月30日エヌ・ディー・エス社発行)」の第2編第2章「電極材料」(123~166頁)に詳細に記載されており、正孔注入層(陽極バッファ層)と電子注入層(陰極バッファ層)とがある。

【0066】陽極バッファ層(正孔注入層)は、特開平9-45479号、同9-260062号、同8-288069号等にもその詳細が記載されており、具体例として、銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニンバッファ層、酸化バナジウムに代表される酸化物バッファ層、アモルファスカーボンバッファ層、ポリアニリン(エメラルディン)やポリチオフェン等の導電性高分子を用いた高分子バッファ層等が挙げられる。

【0067】陰極バッファ層(電子注入層)は、特開平6-325871号、同9-17574号、同10-74586号等にもその詳細が記載されており、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファ層、フッ化リチウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファ層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物バッファ層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファ層等が挙げられる。

【0068】上記バッファ層(注入層)はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるが、その膜厚は0.1~100nmの範囲が好ましい。

【0069】阻止層は、上記のごとく、有機化合物薄膜の基本構成層の他に必要に応じて設けられるものである。例えば、特開平11-204258号、同11-204359号及び「有機EL素子とその工業化最前線(1998年11月30日 エヌ・ディー・エス社発行)」の237頁等に記載されている正孔阻止(ホールブロック)層がある。

【0070】正孔阻止層とは広義では電子輸送層であり、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、電子を輸送しつつ正孔を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

【0071】一方、電子阻止層とは広義では正孔輸送層であり、正孔を輸送する機能を有しつつ電子を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、正孔を輸送しつつ電子を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

【0072】正孔輸送層とは正孔を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。

【0073】正孔輸送層、電子輸送層は単層もしくは複数層設けることができる。発光層は、電極または電子輸送層、正孔輸送層から注入されてくる電子および正孔が再結合して発光する層であり、発光する部分は、発光層内であっても発光層と隣接層との界面であっても良い。

【0074】発光層に使用される材料(以下、発光材料という)は、蛍光または燐光を発する有機化合物または錯体であることが好ましく、有機EL素子の発光層に使用される公知のものの中から適宜選択して用いることができる。このような発光材料は、主に有機化合物であり、所望の色調により、例えば、Macromol. Synth., 125巻, 17~25頁に記載の化合物等を用いることができる。

【0075】発光材料は、発光性能の他に、正孔輸送機能や電子輸送機能を併せ持っていても良く、正孔輸送材料や電子輸送材料の殆どが、発光材料としても使用できる。

【0076】発光材料は、p-ポリフェニレンビニレンやポリフルオレンのような高分子材料でも良く、さらに前記発光材料を高分子鎖に導入した、または前記発光材料を高分子の主鎖とした高分子材料を使用しても良い。

【0077】この発光層は、上記化合物を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法などの公知の薄膜化法により製膜して形成することができる。発光層としての膜厚は、特に制限はないが、通常は5nm~5 $\mu$ mの範囲で選ばれる。この発光層は、これらの発光材料1種又は2種以上からなる単一層構造であって

もよいし、あるいは、同一組成又は異種組成の複数層からなる積層構造であってもよい。本発明の有機EL素子の好ましい態様は、発光層が2種以上の材料からなり、その内の少なくとも1種が本発明に係る化合物の場合である。

【0078】また、この発光層は、特開昭57-51781号公報に記載されているように、樹脂などの結着材と共に上記発光材料を溶剤に溶かして溶液としたのち、これをスピコート法などにより薄膜化して形成することができる。このようにして形成された発光層の膜厚については、特に制限はなく、状況に応じて適宜選択することができるが、通常は5nm～5μmの範囲である。

【0079】前述のように、発光層の材料が2種以上であるとき、主成分をホスト、その他の成分をドーパントという。ドーパントの混合比は、好ましくは質量比で0.1%以上、15%未満である。

【0080】発光層のホスト化合物は、有機化合物または錯体であることが好ましく、本発明においては、好ましくは蛍光極大波長がドーパントよりも短波長であることである。

【0081】ホスト化合物としては、有機EL素子に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができ、また後述の正孔輸送材料や電子輸送材料の殆どが発光層ホスト化合物としても使用できる。

【0082】ポリビニルカルbazoolやポリフルオレンのような高分子材料でもよく、さらに前記ホスト化合物を高分子鎖に導入した、または前記ホスト化合物を高分子の主鎖とした高分子材料を使用してもよい。

【0083】ホスト化合物としては、正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、かつ高T<sub>g</sub>（ガラス転移温度）である化合物が好ましい。

【0084】正孔輸送層とは正孔を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。正孔輸送層は単層もしくは複数層設けることができる。

【0085】正孔輸送材料としては、特に制限はなく、従来、光導伝材料において、正孔の電荷注入輸送材料として慣用されているものやEL素子の正孔注入層、正孔輸送層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【0086】正孔輸送材料は、正孔の注入もしくは輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。例えばトリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また、導電性高分

子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられる。

【0087】正孔輸送材料としては、上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

【0088】芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N' - テトラフェニル-4, 4' - ジアミノフェニル; N, N' - ジフェニル-N, N' - ビス(3-メチルフェニル) - [1, 1' - ビフェニル] - 4, 4' - ジアミン(TPD); 2, 2-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)プロパン; 1, 1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン; N, N, N', N' - テトラ-p-トリル-4, 4' - ジアミノビフェニル; 1, 1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル) - 4-フェニルシクロヘキサン; ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン; ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)フェニルメタン; N, N' - ジフェニル-N, N' - ジ(4-メトキシフェニル) - 4, 4' - ジアミノビフェニル; N, N, N', N' - テトラフェニル-4, 4' - ジアミノジフェニルエーテル; 4, 4' - ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル; N, N, N-トリ(p-トリル)アミン; 4-(ジ-p-トリルアミノ) - 4' - [4-(ジ-p-トリルアミノ)スチリル]スチルベン; 4-N, N-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニルビニル)ベンゼン; 3-メトキシ-4'-N, N-ジフェニルアミノスチルベンゼン; N-フェニルカルbazool、さらに、米国特許第5,061,569号明細書に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有するもの、例えば、4, 4' - ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(NPD)、特開平4-308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4, 4', 4' - トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(MTDATA)等が挙げられる。

【0089】さらに、これらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

【0090】また、p型-Si, p型-SiC等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することができる。

【0091】また、本発明においては、正孔輸送層の正孔輸送材料は発光層に用いられる化合物に比べ、蛍光極大波長がより短波長であり、かつ高T<sub>g</sub>である化合物が好ましい。

【0092】この正孔輸送層は、上記正孔輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、イ

10

20

30

40

50

ンクジェット法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5～5000nm程度である。この正孔輸送層は、上記材料の一種または二種以上からなる一層構造であってもよい。

【0093】電子輸送層とは電子を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で電子注入層、正孔阻止層も電子輸送層に含まれる。電子輸送層は単層もしくは複数層設けることができる。

【0094】さらに、必要に応じて用いられる電子輸送層は、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよく、その材料としては従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。

【0095】この電子輸送層に用いられる材料（以下、電子輸送材料という）の例としては、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノロン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、ナフタレンペリレンなどの複素環テトラカルボン酸無水物、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体などが挙げられる。さらに、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送材料として用いることができる。

【0096】さらに、これらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

【0097】また、8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えば、トリス（8-キノリノール）アルミニウム（Alq）、トリス（5,7-ジクロロ-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（5,7-ジプロモ-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（2-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（5-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、ビス（8-キノリノール）亜鉛（Znq）など、及びこれらの金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、Ga又はPbに置き替わった金属錯体も、電子輸送材料として用いることができる。その他、メタルフリー若しくはメタルフタロシアニン、又はそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基などで置換されているものも、電子輸送材料として好ましく用いることができる。また、発光層の材料として例示したジスチルピラジン誘導体も、電子輸送材料として用いることができるし、正孔注入層、正孔輸送層と同様に、n型-Si、n型-SiCなどの無機半導体も電子輸送材料として用いることができる。

【0098】電子輸送層に用いられる化合物も、正孔輸送層に用いられる化合物と同様に、発光層で用いられる化合物に比べ、蛍光極大波長がより短波長であり、かつ高Tgである化合物が好ましい。

【0099】本発明の有機EL素子に好ましく用いられる基体は、ガラス、プラスチック等の種類には特に限定はなく、また、透明のものであれば特に制限はないが、好ましく用いられる基板としては例えばガラス、石英、光透過性樹脂フィルムを挙げることができる。特に好ましい基体は、有機EL素子にフレキシブル性を与えることが可能な樹脂フィルムである。

【0100】樹脂フィルムとしては、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレンナフタレート（PEN）、ポリエーテルスルホン（PES）、ポリエーテルイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリフェニレンスルフィド、ポリアリレート、ポリイミド、ポリカーボネート（PC）、セルローストリアセテート（TAC）、セルロースアセテートプロピオネート（CAP）等からなるフィルム等が挙げられる。

【0101】樹脂フィルムの表面には、無機物もしくは有機物の被膜またはその両者のハイブリッド被膜が形成されていてもよい。

【0102】本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、室温における発光の外部取り出し効率は1%以上であることが好ましく、より好ましくは2%以上である。ここに、外部取り出し量子効率(%)＝有機EL素子外部に発光した光子数/有機EL素子に流した電子数×100である。

【0103】また、カラーフィルター等の色相改良フィルター等を併用してもよい。本発明の表示装置は、少なくとも2種類の異なる発光極大波長を有する有機EL素子からなるが、有機EL素子を作製する好適な例を説明する。例として、陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/電子注入層/陰極からなる有機EL素子の作製法について説明すると、まず適当な基体上に、所望の電極物質、例えば陽極用物質からなる薄膜を、1μm以下、好ましくは10～200nmの膜厚になるように、蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陽極を作製する。次に、この上に素子材料である正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層、正孔阻止層の有機化合物薄膜を形成させる。

【0104】この有機化合物薄膜の薄膜化の方法としては、前記の如くスピンコート法、キャスト法、インクジェット法、蒸着法、印刷法等があるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法またはスピンコート法が特に好ましい。さらに層ごとに異なる製膜法を適用してもよい。製膜に蒸着法を採用する場合、その蒸着条件は、使用する化合物の種類等により異なるが、一般にポート加熱温度50～450℃、真空度 $10^{-6}$ ～ $10^{-3}$ Pa、蒸着速度0.01～50nm/秒、基板温度-50～300℃、膜厚0.1nm～5μmの範囲で適宜選ぶことが望ましい。

【0105】これらの層の形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を、1μm以下好ましくは50～200nm

mの範囲の膜厚になるように、例えば蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陰極を設けることにより、所望の有機EL素子が得られる。この有機EL素子の作製は、一回の真空引きで一貫して正孔注入層から陰極まで作製するのが好ましいが、途中で取り出して異なる製膜法を施してもかまわない。その際には作業を乾燥不活性ガス雰囲気下で行う等の配慮が必要となる。

【0106】本発明の表示装置は、発光層形成時のみシャドーマスクを設け、他層は共通であるのでシャドーマスク等のパターニングは不要であり、一面に蒸着法、キャスト法、スピンコート法、インクジェット法、印刷法等で膜を形成できる。

【0107】発光層のみパターニングを行う場合、その方法に限定はないが、好ましくは蒸着法、インクジェット法、印刷法である。蒸着法を用いる場合においてはシャドーマスクを用いたパターニングが好ましい。

【0108】また作製順序を逆にして、陰極、電子注入層、電子輸送層、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、陽極の順に作製することも可能である。

【0109】このようにして得られた多色の表示装置に、直流電圧を印加する場合には、陽極を＋、陰極を－の極性として電圧2～40V程度を印加すると、発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れずに発光は全く生じない。さらに、交流電圧を印加する場合には、陽極が＋、陰極が－の状態になったときのみ発光する。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

【0110】本発明の表示装置は、表示デバイス、ディスプレイ、各種発光光源として用いることができる。表示デバイス、ディスプレイにおいて、青、赤、緑発光の3種の有機EL素子を用いることにより、フルカラーの表示が可能となる。

【0111】表示デバイス、ディスプレイとしてはテレビ、パソコン、モバイル機器、AV機器、文字放送表示、自動車内の情報表示等が挙げられる。特に、静止画像や動画を再生する表示装置として使用してもよく、動画再生用の表示装置として使用する場合は駆動方式は単純マトリックス（パッシブマトリックス）方式でもアクティブマトリックス方式でもどちらでもよい。

【0112】発光光源としては、家庭用照明、車内照明、時計や液晶用のバックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるがこれに限定するものではない。

【0113】また、本発明の有機EL素子に共振器構造を持たせた有機EL素子として用いてもよい。このような共振器構造を有した有機EL素子の使用目的としては、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるがこれに限定するものではない。また、レーザー発振をさせる

ことにより、上記用途に使用してもよい。

【0114】

【実施例】以下、実施例を挙げて本発明を詳細に説明するが、本発明の態様はこれに限定されない。

【0115】実施例1

《有機EL素子の作製》陽極としてガラス上にITO（インジウムチンオキسد）を厚さ150nmで成膜した基板（NHテクノグラス社製：NA-45）にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をi-プロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥した後、UVオゾン洗浄を5分間行った。この透明支持基板を、市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ボートにα-NPDを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートに比較化合物1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにバソキュプロリン（BCP）を200mg入れ、さらに別のモリブデン製抵抗加熱ボートにAlq<sub>3</sub>を200mg入れ、真空蒸着装置に取付けた。

【0116】次いで、真空槽を $4 \times 10^{-4}$  Paまで減圧した後、α-NPDの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1～0.3 nm/secで透明支持基板に膜厚50nmで蒸着し、正孔輸送層を設けた。蒸着時の基板温度は室温であった。

【0117】次いで、比較化合物1の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1～0.3 nm/secで膜厚30nmの発光層を設けた。更に、BCPの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、膜厚10nmの正孔阻止層を設けた。更に、Alq<sub>3</sub>の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1～0.3 nm/secで膜厚20nmの電子輸送層を設けた。

【0118】次に、真空槽をあけ、電子注入層の上にステンレス鋼製の長方形穴あきマスクを設置し、一方、モリブデン製抵抗加熱ボートにマグネシウム3gを入れ、タングステン製の蒸着用バスケットに銀を0.5g入れ、再び真空槽を $2 \times 10^{-4}$  Paまで減圧した後、マグネシウム入りのボートに通電して蒸着速度1.5～2.0 nm/secでマグネシウムを蒸着した。この際、同時に銀のバスケットを加熱し、蒸着速度0.1 nm/secで銀を蒸着し、前記マグネシウムと銀との混合物から成る陰極とすることにより、表1に示す比較用の有機EL素子OLED1-1を作製した。

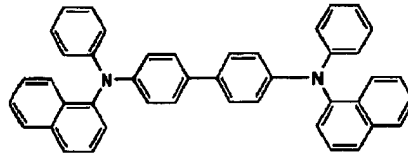
【0119】次いで、上記有機EL素子OLED1-1の作製において、比較化合物1を表1に記載の各化合物に変更した以外は同様にして、有機EL素子OLED1-2～1-10を作製した。なお、各有機EL素子の発光色は青色から緑色を示した。

【0120】

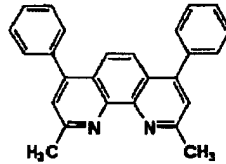
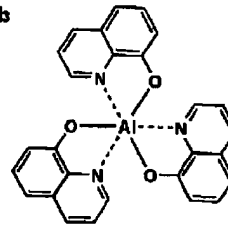
【化31】

39  
 $\alpha$ -NPD

40

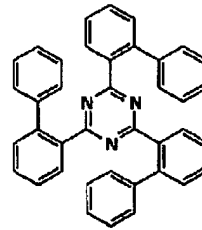
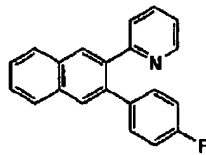


BCP

Alq<sub>3</sub>

【0121】

比較化合物1

\* \* 【化32】  
比較化合物2

【0122】《有機EL素子の評価》上記作製した各有機EL素子を、温度23度、乾燥窒素ガス雰囲気下で10V直流電圧印加による連続点灯を行い、点灯開始時の発光輝度( $\text{cd}/\text{m}^2$ )および輝度の半減する時間を測定した。発光輝度は、有機EL素子OLED1-1の発光輝度を100とした時の相対値で表し、輝度の半減する時間は有機エレクトロルミネッセンス素子OLED1※

※-1の発光輝度が半減する時間を100とした相対値で表した。なお、発光輝度( $\text{cd}/\text{m}^2$ )は、ミノルタ製CS-1000を用いて測定した。

【0123】以上により得られた結果を表1に示す。

【0124】

【表1】

有機EL素子番号	発光層化合物	評価結果		備考
		発光輝度	半減時間	
OLED1-1	比較化合物1	100	100	比較例
OLED1-2	比較化合物2	115	170	比較例
OLED1-3	例示化合物1	174	345	本発明
OLED1-4	例示化合物9	160	510	本発明
OLED1-5	例示化合物14	186	420	本発明
OLED1-6	例示化合物18	168	440	本発明
OLED1-7	例示化合物24	197	365	本発明
OLED1-8	例示化合物27	225	340	本発明
OLED1-9	例示化合物30	268	350	本発明
OLED1-10	例示化合物33	256	410	本発明

【0125】表1より明らかなように、本発明に係る化合物を用いた有機EL素子は、比較例に対して、点灯開始時の発光輝度及び発光輝度が半減するまでの時間が改善されているのが分かる。

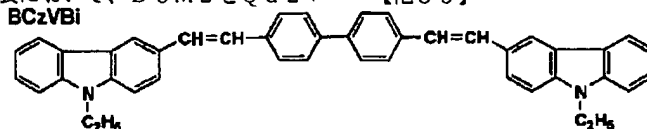
【0126】実施例2

実施例1に記載の有機EL素子の作製において、本発明に係る例示化合物24とDCM2を100:1の質量比で蒸着した膜厚30nmの発光層を用いた以外は同様にして、有機エレクトロルミネッセンス素子OLED2-1を作製した。上記作製した有機EL素子OLED2-

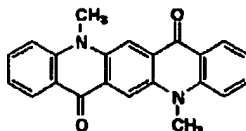
41

1を、温度23度、乾燥窒素ガス雰囲気下で10V直流電圧印加すると、赤色の発光が得られた。

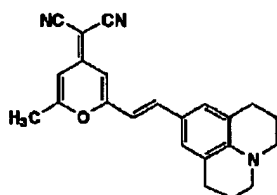
【0127】また、上記有機エレクトロルミネッセンス素子OLED2-1の作製において、DCM2をQd2\*



Qd2



DCM2



42

\*またはBCzVBiに代えることにより、それぞれ、緑色または青色の発光が得られた。

【0128】

【化33】

## 【0129】実施例3

《有機EL素子の作製》陽極としてガラス上にITO（インジウムチンオキド）を膜厚150nmで成膜した基板（NHテクノグラス社製：NA-45）にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をi-プロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥した後、UVオゾン洗浄を5分間行った。この透明支持基板を、市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ポートに、m-MTDATAを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにDPVBiを200mg入れ、また、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにBCPを200mgを入れ真空蒸着装置に取付けた。

【0130】次いで、真空槽を $4 \times 10^{-4}$  Paまで減圧した後、m-MTDATAの入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1~0.3nm/secで透明支持基板に膜厚25nmで蒸着し、更に、DPVBiの入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1~0.3nm/secで膜厚20nmで蒸着し、発光層を設けた。蒸着時の基板温度は室温であった。

【0131】次いで、BCPの入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1~0.3nm/secで膜厚30nmの電子輸送層を設けた。

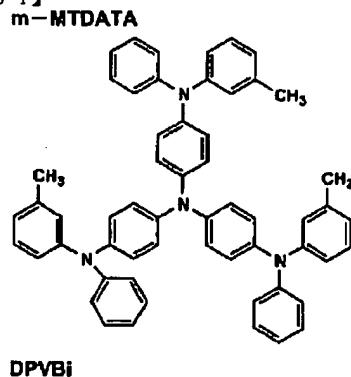
【0132】次に、真空槽をあげ、電子輸送層の上にステンレス鋼製の長方形穴あきマスクを設置し、一方、モリブデン製抵抗加熱ポートにマグネシウム3gを入れ、タンガステン製の蒸着用バスケットに銀を0.5g入れ、再び真空槽を $2 \times 10^{-4}$  Paまで減圧した後、マグネシウム入りのポートに通電して蒸着速度1.5~2.0nm/secでマグネシウムを蒸着し、この際、同時に銀のバスケットを加熱し、蒸着速度0.1nm/secで銀を蒸着し、前記マグネシウムと銀との混合物から成る陰極とすることにより、比較用有機EL素子OLED3-1を作製した。

0nm/secでマグネシウムを蒸着し、この際、同時に銀のバスケットを加熱し、蒸着速度0.1nm/secで銀を蒸着し、前記マグネシウムと銀との混合物から成る陰極とすることにより、比較用有機EL素子OLED3-1を作製した。

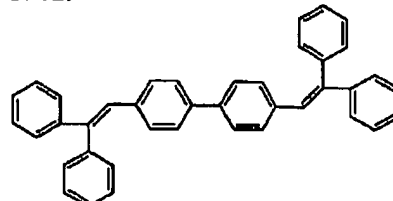
【0133】上記有機EL素子OLED3-1の作製において、BCPを表2に記載の各化合物に代えた以外は同様にして、有機エレクトロルミネッセンス素子OLED3-2~12を作製した。

【0134】

【化34】



DPVBi



【0135】《有機EL素子の評価》上記作製した各有

機EL素子を、温度23度、乾燥窒素ガス雰囲気下で10V直流電圧印加による連続点灯を行い、点灯開始時の発光輝度( $\text{cd}/\text{m}^2$ )および輝度の半減する時間を測定した。発光輝度は、有機EL素子OLED3-1の発光輝度を100とした時の相対値で表し、輝度の半減する時間は有機エレクトロルミネッセンス素子OLED3\*

\*-1の発光輝度が半減する時間を100とした相対値で表した。発光輝度( $\text{cd}/\text{m}^2$ )は、ミノルタ製CS-1000を用いて測定した。なお、全ての有機EL素子の発光色は、青色であった。

【0136】

【表2】

有機EL素子番号	電子輸送層化合物	評価結果		備 考
		発光輝度	半減時間	
OLED3-1	BCP	100	100	比較例
OLED3-2	比較化合物2	90	130	比較例
OLED3-3	例示化合物3	164	345	本発明
OLED3-4	例示化合物5	155	364	本発明
OLED3-5	例示化合物8	136	312	本発明
OLED3-6	例示化合物14	199	402	本発明
OLED3-7	例示化合物17	136	337	本発明
OLED3-8	例示化合物21	132	216	本発明
OLED3-9	例示化合物24	143	335	本発明
OLED3-10	例示化合物27	142	264	本発明
OLED3-11	例示化合物30	204	245	本発明
OLED3-12	例示化合物32	160	502	本発明

【0137】表2より明らかなように、本発明に係る化合物を用いた有機EL素子は、比較例に対して、点灯開始時の発光輝度、発光効率及び輝度の半減する時間が改善されて、特に、輝度の半減する時間が改善されているのが分かる。

#### 【0138】実施例4

実施例3で作製した有機EL素子OLED3-11の陰極をA1に置き換え、電子輸送層と陰極の間にフッ化リチウムを膜厚0.5nmとなるように蒸着して陰極バッファ層を設けた以外は同様にして有機EL素子OLED4-1を作製した。

【0139】上記作製した有機EL素子OLED4-1を、実施例3に記載の方法と同様にして、点灯開始時の発光輝度( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、および輝度の半減する時間を測定したところ、有機エレクトロルミネッセンス素子OLED3-1との相対比較で、発光輝度214、輝度の半減する時間405となった。また、有機EL素子OLED3-3~10、3-12についても、有機EL素子OLED4-1と同様にして、陰極バッファ層を導入した結果、その効果がより一層発揮されることを確認することができた。

#### 【0140】実施例5

実施例3で作製した各有機EL素子の発光層において、DPVBからそれぞれAlq<sub>3</sub>またはAlq<sub>3</sub>とDCM2を100:1の質量比で蒸着した発光層に変更した以外は同様にして、各有機エレクトロルミネッセンス素子を作製し、同様の方法で点灯開始時の発光輝度( $\text{cd}/\text{m}^2$ )および輝度の半減する時間を測定した。その結果、実施例3と同様に、本発明に係る化合物を電子輸送

層に用いた有機EL素子は、比較例(有機EL素子3-1、3-2)に対して、点灯開始時の発光輝度( $\text{cd}/\text{m}^2$ )および輝度の半減する時間の改善が確認された。

【0141】なお、Alq<sub>3</sub>を発光層に用いた場合は緑色の発光が得られ、Alq<sub>3</sub>とDCM2を100:1で共蒸着した発光層では、赤色の発光が得られた。

#### 【0142】実施例6

《有機EL素子の作製》有機EL素子OLED6-1~6-8を、以下の記載の方法に準じて作製した。

【0143】陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上にITO(インジウムチンオキシド)を膜厚150nmで成膜した基板(NHテクノグラス社製NA-45)にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥した後、UVオゾン洗浄を5分間行なった。

【0144】この透明支持基板を、市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ポートに、 $\alpha$ -NPDを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにCBPを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにバソキュプロイン(BCP)を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに例示化合物Ir-1(燐光性化合物)を100mg入れ、さらに別のモリブデン製抵抗加熱ポートにAlq<sub>3</sub>を200mg入れ、真空蒸着装置に取付けた。

【0145】次いで、真空槽を $4 \times 10^{-4}$  Paまで減圧した後、 $\alpha$ -NPDの入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/secで透明支持基板に蒸着し、膜厚45nmの正孔輸送層を設けた。さらに、



CBPとIr-1の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度0.1nm/sec、0.01nm/secで前記正孔輸送層上に共蒸着して膜厚20nmの発光層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。さらに、BCPの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/secで前記発光層の上に蒸着して膜厚10nmの正孔阻止の役割も兼ねた電子輸送層を設けた。その上に、さらに、Alq<sub>3</sub>の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/secで前記電子輸送層の上に蒸着して更に膜厚40nmの電子注入層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

【0146】次に、LiFを膜厚0.5nmで、またAlを膜厚110nmで蒸着して陰極を形成し、有機EL素子OLED6-1を作製した。

【0147】上記有機EL素子OLED6-1の作製において、発光層のホスト化合物としてCBPに代えて、表3に記載の各化合物を用いた以外は全く同様に、有機EL素子OLED6-2～6-12を作製した。

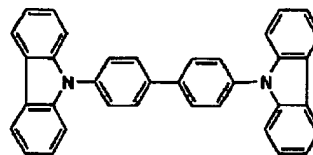
【0148】

【化35】

20

\*

CBP



【0149】《有機EL素子の評価》上記作製した有機EL素子OLED6-1～6-12について、発光輝度および発光寿命の評価を行った。各有機EL素子を、温度23℃、乾燥窒素ガス雰囲気下で9V直流電圧を印加した時の発光輝度および輝度の半減時間（発光寿命）を測定した。発光輝度は有機EL素子OLED6-1の発光輝度を100とした時の相対値で表し、輝度の半減する時間にも有機EL素子OLED6-1を100とした時の相対値で表し、得られた結果を表3に示す。なお、発光輝度（cd/m<sup>2</sup>）については、ミノルタ製CS-1000を用いて測定した。なお、各有機EL素子は、初期駆動電圧3Vで電流が流れ始め、発光層のドーパントである燐光性化合物からの緑色の発光を示した。

【0150】

【表3】

有機EL素子番号	ホスト化合物	評価結果		備考
		発光輝度	半減時間	
OLED6-1	CBP	100	100	比較例
OLED6-2	比較化合物1	92	110	比較例
OLED6-3	例示化合物3	156	210	本発明
OLED6-4	例示化合物7	164	195	本発明
OLED6-5	例示化合物9	148	220	本発明
OLED6-6	例示化合物10	175	210	本発明
OLED6-7	例示化合物14	148	300	本発明
OLED6-8	例示化合物18	170	200	本発明
OLED6-9	例示化合物20	145	255	本発明
OLED6-10	例示化合物25	202	210	本発明
OLED6-11	例示化合物29	148	245	本発明
OLED6-12	例示化合物32	139	250	本発明

【0151】表3から明らかなように、本発明に係る化合物をホスト化合物とした有機EL素子は、比較例に対して、発光輝度が高く、発光寿命が長いことから、有機EL素子として非常に有用であることを確認することができた。

【0152】更に、上記作製した各有機EL素子について、燐光性化合物Ir-1に代えて、例示化合物Ir-11またはIr-9を用いて、各有機EL素子を作製し、同様の評価を行った結果、上記と同様の効果が得られた。なお、例示化合物Ir-11を用いた素子は青色の発光を、また例示化合物Ir-9を用いた素子では赤色の発光が得られた。

【0153】実施例7

《有機EL素子の作製》上記実施例6で作製した有機E

L素子OLED6-1において、電子輸送層で用いたBCPを、表4に記載の各化合物に変更した以外は同様に、有機EL素子OLED7-1～7-11を作製した。

【0154】《有機EL素子の評価》上記作製した有機EL素子OLED7-1～7-11及び実施例6で作製した有機EL素子OLED6-1について、発光輝度および発光寿命の評価を行った。各有機EL素子を、温度23℃、乾燥窒素ガス雰囲気下で9V直流電圧を印加した時の発光輝度および輝度の半減時間を測定した。発光輝度は有機EL素子OLED6-1の発光輝度を100とした時の相対値で表し、輝度の半減する時間にも有機EL素子OLED6-1を100とした時の相対値で表し、得られた結果を表4に示した。なお、発光輝度（c

d/m<sup>2</sup>)については、ミノルタ製CS-1000を用いて測定し、得られた結果を表4に示す。なお、各有機EL素子は、初期駆動電圧3Vで電流が流れ始め、発光層のドーパントである燐光性化合物からの緑色の発光を\*

\*示した。  
【0155】  
【表4】

有機EL素子番号	電子輸送材料	評価結果		備考
		発光輝度	半減時間	
OLED6-1	BCP	100	100	比較例
OLED7-1	比較化合物2	80	120	比較例
OLED7-2	例示化合物1	162	345	本発明
OLED7-3	例示化合物7	181	295	本発明
OLED7-4	例示化合物8	174	330	本発明
OLED7-5	例示化合物10	169	305	本発明
OLED7-6	例示化合物13	158	340	本発明
OLED7-7	例示化合物17	161	305	本発明
OLED7-8	例示化合物19	149	320	本発明
OLED7-9	例示化合物23	188	310	本発明
OLED7-10	例示化合物28	171	290	本発明
OLED7-11	例示化合物31	180	370	本発明

【0156】表4から明らかなように、本発明に係る化合物を電子輸送層（正孔阻止層）に用いた各有機EL素子は、比較例に対して、発光輝度が高く、発光寿命が長いことから、有機EL素子として非常に有用であることがわかった。

【0157】更に、上記作製した各有機EL素子7-1～7-11について、燐光性化合物Ir-1に代えて、例示化合物Ir-11またはIr-9を用いて、各有機EL素子を作製し、同様の評価を行った結果、上記と同様の効果が得られた。なお、例示化合物Ir-11を用いた素子は青色の発光を、また例示化合物Ir-9を用いた素子では赤色の発光が得られた。

#### 【0158】実施例8

実施例6で作製したそれぞれ赤色、緑色、青色発光の各有機エレクトロルミネッセンス素子を同一基板上に並置し、図1に示すアクティブマトリクス方式フルカラー表示装置を作製した。

【0159】図1には作製したフルカラー表示装置の表示部の模式図のみを示した。即ち同一基板上に、複数の走査線5及びデータ線6を含む配線部と、並置した複数の画素3（発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素等）とを有し、配線部の走査線5及び複数のデータ線6は、それぞれ導電材料からなり、走査線5とデータ線6は格子状に直交して、直交する位置で画素3に接続している（詳細は図示せず）。前記複数の画素3は、それぞれの発光色に対応した有機EL素子、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタと駆動トランジスタそれぞれが設けられたアクティブマトリクス方式で駆動されており、走査線5から走査信号が印加されると、データ線6から画像データ信号を受け取り、受け取

った画像データに応じて発光する。この様に各赤、緑、青の画素を適宜、並置することによって、フルカラー表示が可能となる。図2は、1画素当たりの回路図である。

【0160】上記フルカラー表示装置を駆動することにより、輝度の高い鮮明なフルカラー動画表示が得られた。

#### 【0161】

【発明の効果】本発明により、特定構造のフェニルピリジン化合物を用いて素子の発光輝度の向上および耐久性の両立ができ、また、フェニルピリジン化合物を燐光性発光用のホスト化合物として用いること、または、フェニルピリジン化合物を電子輸送材料（ホールブロッカー）として用いることにより、発光輝度の向上および耐久性を両立した有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを用いた発光輝度の高い、長寿命な表示装置を提供することができた。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。

【図2】本発明の有機EL素子の1画像当たりの回路の一例を示した回路図である。

#### 【符号の説明】

- 1 ガラス基板
- 2 配線部
- 3 画素
- 5 走査線
- 6 データ線
- 7 電源ライン
- 10 有機エレクトロルミネッセンス素子

(26)

特開2003-282270

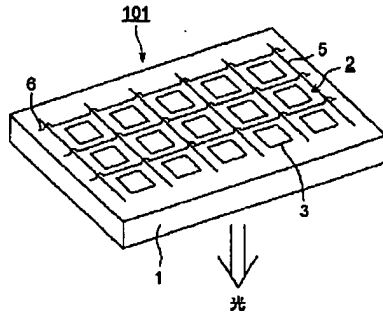
50

49

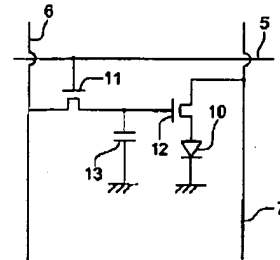
- 11 スイッチングトランジスタ  
12 駆動トランジスタ

- \* 13 コンデンサ  
\* 101 表示部

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

C09K 11/06

H05B 33/14

識別記号

660

690

F I

C09K 11/06

H05B 33/14

テーマコード(参考)

660

690

B

(72)発明者 井上 祥雄

宮城県仙台市青葉区国見3丁目9番18号

(72)発明者 大井 秀一

宮城県仙台市太白区長町8丁目6番10号

(72)発明者 高山 将一

宮城県仙台市青葉区八幡4丁目7番5号

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB11 DB03